

**Part A (Page 1)**

1. A solid electrolyte fuel cell in which gas passage plates formed of a heat resisting metal are respectively disposed on back surfaces of electrodes of a platy cell composed of an anode electrode, a solid electrolyte layer, and a cathode electrode, wherein a coating layer of conductive ceramics selected from silicide, carbide, and nitride is formed on an abutting part of the gas passage on the anode electrode.
2. The solid electrolyte fuel cell according to claim 1, wherein the silicide, carbide, and nitride are  $\text{MoSi}_2$ ,  $\text{TiC}$ , and  $\text{TiN}$  respectively.

**Part B (Page 2)**

A pair of gas passage plates (5)(6) which hold the cell (1) so as to be sandwiched therebetween are formed of a heat resisting material such as nickel chrome alloy. The gas passage plates (5)(6) each have supplying grooves (5') for fuel gas on the anode side gas passage plate (5), and supplying grooves (6') for oxidant gas on the cathode side gas passage plate (6).

An abutting portion of the anode side gas passage plate (5) on the anode electrode (3) is coated by  $\text{TiN}$  (electric conductivity of  $5 \times 10^4 \text{ s/cm}$ ), which is a conductive nitride ceramics, so as to be a thin layer (7)

having a thickness of 5 to 10  $\mu\text{m}$  by use of an ion plating method. For the coating materials, there can be used, in addition to TiN, materials showing a stable conductivity in an atmosphere of high-temperature reduction and oxidization, such as  $\text{MoSi}_2$  (electric conductivity of  $2 \times 10^4 \text{ s/cm}$ ) and TiC (electric conductivity of  $1 \times 10^4 \text{ s/cm}$ ).

An abutting portion of the cathode side gas passage plate (6) on the cathode electrode (4) is coated by perovskite oxide selected from  $\text{LaCrO}_3$ ,  $\text{LaMnO}_3$ ,  $\text{LaCoO}_3$  and the like which show a stable conductivity in an atmosphere of high-temperature oxidization, so as to be a thin layer (not shown) similarly to the above.

As the coating method, in addition to the ion plating method, a sputtering method, various spraying methods (plasma spraying, arc spraying), and a chemical vapor deposition (CVD) method are applicable.

### **Part C (Page 3)**

#### **[BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS]**

Fig. 1 is a sectional view of a platy unit cell of a solid electrolyte fuel cell according to the invention.

Fig. 2 is a part enlarged sectional view taken on line X-X of Fig. 1.

Fig. 3 is a comparative view of characteristics of fuel cells.

**Partial Translation of JP-A 3-71561**

2 SOLID ELECTROLYTE LAYER

3 ANODE ELECTRODE

4 CATHODE ELECTRODE

5, 6 GAS PASSAGE PLATES

5' FUEL GAS SUPPLYING GROOVE

6' OXIDANT GAS SUPPLYING GROOVE

7 COATING LAYER

8 RESERVOIR

9 MELTED BODY FOR SEAL

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 03-071561

(43)Date of publication of application : 27.03.1991

(51)Int.Cl.

H01M 8/02  
H01M 8/12

(21)Application number : 01-206142

(71)Applicant : SANYO ELECTRIC CO LTD

(22)Date of filing : 09.08.1989

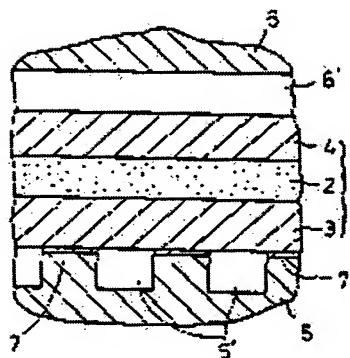
(72)Inventor : MURAKAMI SHUZO  
AKIYAMA YUKINORI  
ISHIDA NOBORU  
SAITO TOSHIHIKO

## (54) SOLID ELECTRODE FUEL CELL

## (57)Abstract:

**PURPOSE:** To prevent oxidation due to moisture in fuel gas and stabilize the characteristics of a cell for a long time by forming a covering layer of conductive ceramics having resistance to oxidation and reduction at a portion where the covering layer comes into contact with the anode electrode of a gas passageway plate.

**CONSTITUTION:** A plate cell 1 is formed of an electrolytic layer 2, an anode electrode 3 and a cathode electrode 4. A pair of gas passageway plates 5, 6 which sandwich the cell 1 have a fuel gas supply groove 5' on an anode-side passageway plate 5 made up of heat resisting metal and an oxidant gas supply groove 6' on a cathode-side passageway plate 6. A portion where the passageway plate 5 comes into contact with the anode electrode 3 is covered with a conductive ceramics layer 7 selected from such silicide, carbide and nitride as MoSi<sub>2</sub>, TiC and TiN. Thereby, it is possible to prevent oxidation of a contact portion due to moisture contained in fuel gas and stabilize the characteristics of a cell for a long time.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision]

⑨ 日本国特許庁(JP) ⑩ 特許出願公開  
 ⑪ 公開特許公報(A) 平3-71561

⑫ Int. Cl.<sup>9</sup>

H 01 M 8/02

8/12

識別記号

E  
B

庁内整理番号

9062-5H  
9062-5H  
9062-5H

⑬ 公開 平成3年(1991)3月27日

審査請求 未請求 請求項の数 2 (全3頁)

⑭ 発明の名称 固体電解質燃料電池

⑮ 特 願 平1-206142

⑯ 出 願 平1(1989)8月9日

⑰ 発 明 者	村 上	修 三	大阪府守口市京阪本通2丁目18番地	三洋電機株式会社内
⑰ 発 明 者	秋 山	幸 徳	大阪府守口市京阪本通2丁目18番地	三洋電機株式会社内
⑰ 発 明 者	石 田	登	大阪府守口市京阪本通2丁目18番地	三洋電機株式会社内
⑰ 発 明 者	齋 藤	俊 彦	大阪府守口市京阪本通2丁目18番地	三洋電機株式会社内
⑰ 出 願 人	三洋電機株式会社			大阪府守口市京阪本通2丁目18番地
⑰ 代 理 人	弁理士 西野 卓爾			外2名

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

固体電解質燃料電池

## 2. 特許請求の範囲

① アノード極・固体電解質層・カソード極からなる平板状セルの前記各極背面に、耐熱性金属からなるガス通路板を夫々配置した固体電解質燃料電池において、前記ガス通路の前記アノード極と接触する部分に、ケイ化物、炭化物、窒化物から選ばれた導電性セラミックスの被覆層を形成したことを特徴とする固体電解質燃料電池。

② 前記ケイ化物・炭化物・窒化物は夫々MOSi、TiC、TiNであることを特徴とする請求項1の固体電解質燃料電池。

## 3. 発明の詳細な説明

## (イ) 産業上の利用分野

本発明は高温固体電解質燃料電池に関するものである。

## (ロ) 従来の技術

高温固体電解質燃料電池(以下SOFCと記

す)は、固体電解質内での酸素イオン導電性を利用して燃料ガスと酸化剤ガスを反応させるものである。固体電解質層及び対向極を平板状に重ねたセルでは、各極背面に反応ガスの供給及び集電のためガス通路板を設ける必要があり、このガス通路板としてニッケル・クロムを主体とする耐熱性合金が検討されている。

しかしこれら合金中に含まれているクロムやマンガンなどは、ニッケルに比し酸素ポテンシャルが低いため酸化皮膜を形成しやすい。この皮膜の導電性が極端に低く(導電率 $10^{-11} \sim 10^{-14}$  S/cm)集電部分の接触抵抗を著しく増大させる。そのためカソード側ガス通路板のカソード極と接する部分に導電性の金属複合酸化物を被覆することが提案されている。(特開平1-100866号公報)。

一方アノード側ガス通路板はアノードガスによる還元雰囲気下にあるけれども、アノードガスに含まれるスチーム( $H_2 + 1/2 O_2 \rightarrow H_2O + 2e^-$ による生成水)によりCrやMnが酸化される。

## 特開平3-71561(2)

例えば1000℃でCrは $H_2/H_2O < 10^{-1}/1$  Mnは $H_2/H_2O < 10^{-1}/1$  の数量の水分でも酸化される。(Niは $H_2/H_2O < 1/100$  でなければ酸化しない。)通常アノードガス中には10%程度のスチームが含まれているので、Ni以外のCr、Mnは還元雰囲気下でも酸化が進行して導電性の低下をもたらし、アノード極との接触抵抗を増大させるという問題があった。

## (ハ) 発明が解決しようとする課題

本発明は長期に亘ってガス通路板とアノード極間の電気的接触状態を安定化するものである。

## (ニ) 課題を解決するための手段

本発明はアノード極・固体電解質層・カソード極からなる平板状セルの各極背面に、ニッケルクロムを主体とする耐熱合金製のガス通路板を配置したSOFCにおいて、前記ガス通路板のアノード極と接触する部分に、導電性セラミックスの被覆層を形成したものである。前記導電性セラミックスは $MoSi_2$  (ケイ化物)、TiC (炭化物)、TiN (窒化物) から選ばれる。

## (ホ) 作用

本発明では耐酸化性・耐還元性に優れた導電性セラミックスの被覆層がガス通路板のアノード極と接触する部分に形成されているので、長期に亘って接触部の導電性を安定に保ち電池特性の低下を防止する。

## (ヘ) 実施例

第1図は本発明平板状単セルの断面図、第2図は第1図のX-Xによる要部拡大断面図を示す。

平板状セル(1)は8%イットリアで安定化したジルコニアの焼成体からなる電解質層(2)と、 $Ni-ZrO_2$  サーマットからなるアノード極(3)と $LaO_3, SrO, MnO_2$  などのペロブスカイト型酸化物からなるカソード極(4)とで構成され、これら各極(3)(4)は電極構成材料粉末を含むスラリーを電解質層(2)の各面の夫々0.2mm厚で塗布して後焼成した。

このセル(1)を挟持する一対のガス通路板(5)(6)は、ニッケルクロム合金などの耐熱性金属からなり、アノード側ガス通路板(5)に燃料ガスの

供給溝(5')を、カソード側ガス通路板(6)に酸化剤ガスの供給溝(6')を夫々有する。

このアノード側ガス通路板(5)には、アノード極(3)と接する部分に予め導電性の窒化物系セラミックスであるTiN (導電率 $5 \times 10^{-4} s/cm$ ) をイオンブレーティング法により厚み5~10μmの薄層(7)として被覆する。被覆材としてTiNの他に $MoSi_2$  (導電率 $2 \times 10^{-4} s/cm$ )、TiC ( $1 \times 10^{-4} s/cm$ ) などの高温還元・酸化雰囲気において安定な導電性を示すものであれば使用できる。

一方カソード側ガス通路板(6)のカソード極(4)と接する部分に、高温酸化雰囲気中で安定な導電性を示す $LaCrO_3$ 、 $LaMnO_3$ 、 $LaCoO_3$  などから選ばれたペロブスカイト型酸化物を、前記と同様に薄層(図示せず)として被覆する。

被覆法としてイオンブレーティングの他スパッタリング法、各種溶射法(プラズマ溶射、アーク溶射)及び化学蒸着(CVD)法なども採用できる。

向第1図実施例で下方のガス通路板(5)と一体にセル(1)と上方のガス通路板(6)を取囲む窓部(8)を形成し、この窓部(8)に、バイレックスガラス(商品名)のような非導電性高粘度融体(9)を滴すことによりシール部を形成した場合を示した。

## 実験

ニッケル基合金(Ni80%、Cr20%)上に、夫々TiN、TiC及び $MoSi_2$ を厚み5~10μm被覆した3つの試料と比較のため被覆しないニッケル基合金とを1000℃ $H_2/H_2O = 9/1$ の雰囲気中で500時間放置した。500時間後3つの試料の表面導電率を測定したところいずれも $10^{-4} \sim 10^{-3} s/cm$ のオーダーであり、殆ど変化はみられなかった。一方被覆層のないものは表面導電率が $10^{-5} s/cm$ オーダーと極端に低下していた。

又それぞれの表面をX線分析したところ、比較試料では母材であるNi、Cr以外に $Cr_2O_3$ の酸化物が検出されたが、3つの試料では $Cr_2O_3$ 、

## 特開平3-71561(3)

は検出されず良好な導電性を維持できることが確認された。

本発明セルを所定条件で1000℃まで昇温し、燃料ガスにH<sub>2</sub>（反応生成水として10%のsteamを含む）、酸化剤ガスにO<sub>2</sub>を用い、300mA/cm<sup>2</sup>にて運転した場合の特性を第3図に示す。また比較のためアノード極との接触部分にTiNの被覆層を有しない同様のセル特性を点線で示した。比較セルでは300時間経過後著しい特性の低下が見られるに対し、本発明セルでは安定した特性を示すことがわかる。

500時間経過後運転を中止しセルを分解したところ、アノード極と接触するガス通路板部が本発明セルでは殆ど変化していないのに対し、比較セルではダークグリーンに変色していた。これはCr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の生成のためで、接触抵抗の増大原因を示していた。

## (ト) 発明の効果

本発明によれば耐熱性合金よりなるガス通路板のアノード極と接触する部分に、耐酸化性・耐還

元性にすぐれた導電性セラミックスの被覆層を形成したので、燃料ガス中に含まれる水分による接触部分の酸化を防止し、長時間に亘って電池特性の安定化を図ることができる。

## 4. 図面の簡単な説明

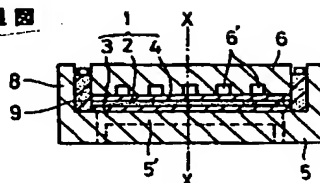
第1図は本発明固体電解質燃料電池の平板状単セルの断面図、第2図は第1図のX-X線による要部拡大断面図、第3図は電池特性比較図である。

2…固体電解質層、3…アノード極、4…カソード極、5、6…ガス通路板、5'…燃料ガス供給溝、6'…酸化剤ガス供給溝、7…被覆層、8…窓部、9…シール用融体。

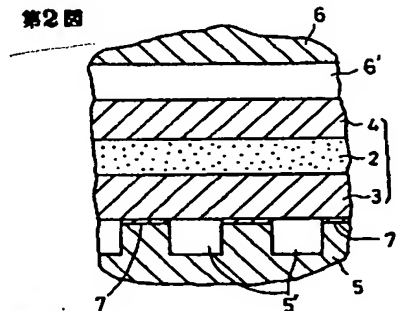
出願人 三洋電機株式会社

代理人 弁理士 西野卓嗣(外2名)

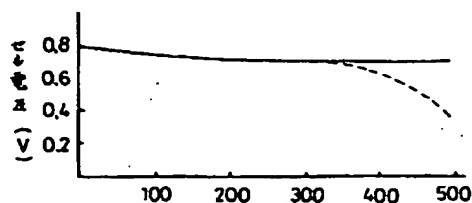
第1図



第2図



第3図



**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**